

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2003年12月24日 (24.12.2003)

PCT

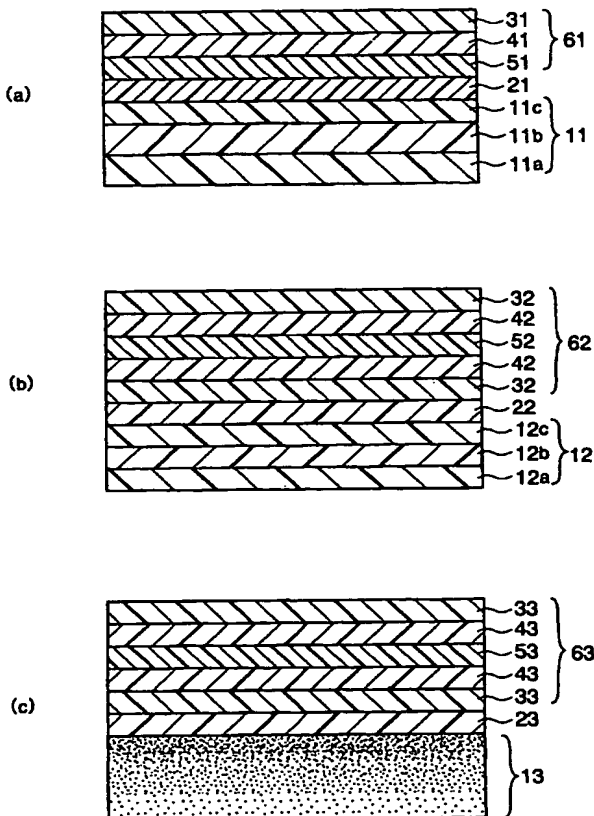
(10) 国際公開番号  
WO 03/107048 A1

- (51) 国際特許分類: G02B 5/30
- (21) 国際出願番号: PCT/JP03/07618
- (22) 国際出願日: 2003年6月16日 (16.06.2003)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願2002-175813 2002年6月17日 (17.06.2002) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日本ゼオン株式会社 (ZEON CORPORATION) [JP/JP]; 〒100-8323 東京都千代田区丸の内二丁目6番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および  
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 村上 俊秀 (MURAKAMI, Toshihide) [JP/JP]; 〒100-8323 東京都千代田区丸の内二丁目6番1号 日本ゼオン株式会社内 Tokyo (JP). 佐藤 隆 (SATO, Takashi) [JP/JP]; 〒100-8323 東京都千代田区丸の内二丁目6番1号 日本ゼオン株式会社内 Tokyo (JP). 荒川 公平 (ARAKAWA, Kohei) [JP/JP]; 〒100-8323 東京都千代田区丸の内二丁目6番1号 日本ゼオン株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 大石 治仁 (OISHI, Haruhito); 〒101-0048 東京都千代田区神田司町2丁目17番地 トウセン神田司町ビル6階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): CN, JP, KR, US.

[続葉有]

(54) Title: OPTICAL LAMINATE, POLARIZATION LIGHT SOURCE DEVICE AND LIQUID CRYSTAL DISPLAY UNIT

(54) 発明の名称: 光学積層体、偏光光源装置および液晶表示装置



(57) Abstract: An optical laminate comprising a cholesteric liquid crystal layer and a 1/4 wavelength plate laminated one upon another, characterized in that the 1/4 wavelength plate comprises at least one layer (A layer) consisting of a material having a positive intrinsic double refraction value and at least one layer (B layer) consisting of a material having a negative intrinsic double refraction value, the orientations of molecular chains in the A layer and the B layer are equal to each other, and a variation in thickness of the 1/4 wavelength plate is below 5%; a polarization light source device provided with this optical laminate; and a liquid crystal display unit provided with this polarization light source device. The optical laminate which delivers an excellent brightness improving effect, is free from a variation in in-plane brightness, and ensures a long-term, stable brightness improving effect; and the polarization light source device and the liquid crystal display unit provided with this optical laminate are provided.

(57) 要約: 本発明は、コレステリック液晶層と1/4波長板とを積層してなる光学積層体であって、前記1/4波長板が、固有複屈折値が正の材料からなる層(A層)を少なくとも1層と、固有複屈折値が負の材料からなる層(B層)の少なくとも1層とを有し、前記A層とB層における分子鎖の配向が等しく、かつ、前記1/4波長板の厚さムラが5%以下のものであることを特徴とする光学積層体、この光学積層体を備える偏光光源装置およびこの偏光光源装置を備える液晶表示装置である。本発明によれば、優れた輝度向上効果を発揮し、かつ、面内での輝度ばらつきがなく、長期にわたって安定した輝度向上効果を発揮する光学積層体、この光学積層体を備える偏光光源装置および液晶表示装置が提供される。



(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

添付公開書類:

— 国際調査報告書

## 明 細 書

### 光学積層体、偏光光源装置および液晶表示装置

#### 技 術 分 野

本発明は、コレステリック液晶層と1/4波長板とが積層されてなる光学積層体、該光学積層体を備える液晶表示用の偏光光源装置、および該偏光光源装置を備える液晶表示装置に関する。

#### 背 景 技 術

液晶ディスプレイ（LCD）は、高画質、薄型、軽量、低消費電力などの特徴をもち、テレビジョン、パーソナルコンピュータなどのフラットパネルディスプレイとして広く用いられている。しかし、ノート型パーソナルコンピュータなどに用いられている透過型のカラー液晶は、必ずしも光エネルギーの利用効率が高いとはいえず、問題となっていた。これは、カラー液晶ディスプレイの場合には、偏光板やカラーフィルターまで含めた光透過率が低く、バックライトから出射される光エネルギーの利用効率が低いためである。したがって、LCDパネルの光透過率を改善し、バックライトの光エネルギーの利用効率を高めることは重要な技術的課題となっている。

かかる課題の解決を図るべく、コレステリック液晶層と1/4波長板とを組みあわせることにより、輝度向上を図ることができる光学積層体が提案されている（日東技報、39巻、第1号、May, 2001年など）。すなわち、図4に示すように、反射板（図示を省略）を有する導光板9bと液晶セル13bとの間に、コレステリック液晶層20と1/4波長板17からなる光学積層体、および偏光フィルム18bをこの順で挟むことにより、バックライト7bからの光（自然光）をコレステリック液晶層20によって透過円偏光と反射円偏光に分離し、透過円偏光（A）を1/4波長板17と偏光フィルム18bにより直線偏光に変換して、液晶セル13bを通過させることができる。また、反射円偏光（B）は、反射板で位相が変化してコレステリック液晶層20を透過する円偏光となり、理論的には、バックライト7bからの光をほぼ100%液晶セル13bに送り込む

ことが可能となるものである。この方法において用いる  $1/4$  波長板は、可視光の全波長領域に渡って  $1/4$  波長の位相差を有する、いわゆる広帯域  $1/4$  波長板であることが必要である。波長によって位相差が異なる波長板を用いると、光源として用いる際に光の白色性が損なわれるからである。

広帯域  $1/4$  波長板としては、それぞれの単層の樹脂延伸フィルムからなる  $1/2$  波長板と  $1/4$  波長板とを、互いの遅相軸が特定の角度で交叉するように積層したものや、特定のセルロースエステル系フィルムを延伸して得られるものが知られている。

しかしながら、前者はそれぞれの延伸フィルムをフィルムの幅または長手方向に対して角度を持った矩形の小片に切り出した後に積層して得られるものであるため、これに対するコレステリック液晶層の積層も小片ごとのパッチ処理になり、生産効率が悪い。また、後者は長尺のフィルムとして得られるので、コレステリック液晶層の積層を連続して行なえるため生産効率を高めることが可能であるが、セルロースエステル系フィルムは湿度の影響を受けやすく、吸湿すると光学特性の安定性に劣るという問題がある。

他の例として、ノルボルネン系樹脂とエステル系樹脂を共押出しして得られた積層体を一軸延伸して得られる  $1/4$  波長板が知られている。この  $1/4$  波長板は良好な広帯域性を有し、光学特性の安定性も良好であって、かつ、長尺のフィルムとして製造することが可能である。

しかし、積層体を延伸する際において、表面に微細な皺（または凹凸）が発生したり、厚さにムラ（ばらつき）を生じて、位相差の均一性が損なわれてしまう場合があった。そして、このような  $1/4$  波長板とコレステリック液晶層とを積層して得られる光学積層体が、面内で透過光の輝度や色度にムラを生じる問題があった。

本発明は、このような従来技術の問題に鑑みてなされたものであり、コレステリック液晶層と、固有複屈折値がそれぞれ正と負の材料からなる層を少なくとも 1 層ずつ含む  $1/4$  波長板とを積層してなる光学積層体であって、優れた輝度向上効果を発揮し、かつ、面内での輝度ばらつきがなく、長期にわたって安定した輝度向上効果を発揮する光学積層体、この光学積層体を備える偏光光源装置およ

び液晶表示装置を提供することを課題とする。

## 発 明 の 開 示

本発明者らは、コレステリック液晶層と1/4波長板とを積層してなる光学積層体について鋭意研究を重ねた結果、コレステリック液晶層と積層する1/4波長板として、固有複屈折値が正の材料からなる層（A層）の少なくとも1層と、固有複屈折値が負の材料からなる層（B層）の少なくとも1層とを有し、前記A層とB層における分子鎖の配向方向が等しく、かつ、前記1/4波長板の厚さムラが所定値以下であるものを使用すると、優れた輝度向上効果を長期にわたって安定して発揮する光学積層体が得られることを見出し、本発明を完成するに到った。

かくして本発明の第1によれば、コレステリック液晶層と1/4波長板とを積層してなる光学積層体であって、前記1/4波長板が、固有複屈折値が正の材料からなる層（A層）の少なくとも1層と、固有複屈折値が負の材料からなる層（B層）の少なくとも1層とを有し、前記A層とB層における分子鎖の配向方向が等しく、かつ、前記1/4波長板の厚さムラが5%以下のものであることを特徴とする光学積層体を提供される。

本発明の光学積層体においては、前記1/4波長板が、固有複屈折値が正の材料と固有複屈折値が負の材料とを共押出しして得た積層体を延伸して得られたものであるのが好ましい。

本発明の光学積層体においては、前記固有複屈折値が正の材料が、脂環式構造含有重合体樹脂であり、その分子量2,000以下の樹脂成分の含有量が5重量%以下のものであるのがより好ましく、これに加えて、前記固有複屈折値が負の材料がビニル芳香族系重合体であるのがさらに好ましい。

また、本発明の光学積層体は、前記1/4波長板がA層/B層/A層、またはB層/A層/B層の構成を有するのが好ましい。

本発明の第2によれば、本発明の光学積層体を備えることを特徴とする偏光光源装置が提供される。

本発明の偏光光源装置は、光反射層、光源および本発明の光学積層体を備え、

光源から発した光が、光学積層体のコレステリック液晶層側から入射し、光学積層体で反射した反射円偏光を光反射層で反射し、光学積層体に再入射するように光反射層、光源および光学積層体を配置してなるのが好ましい。

また、本発明の第3によれば、本発明の偏光光源装置を備える液晶表示装置が提供される。

### 図面の簡単な説明

第1図は、本発明の光学積層体の層構成断面図である。第1図(a)は、3種3層の積層体とコレステリック液晶層とを積層したタイプ、第1図(b)は、3種5層の積層体とコレステリック液晶層とを積層したタイプ、第1図(c)は、(b)において、厚み方向に対して、螺旋ピッチが連続的に変化したコレステリック液晶層とを積層したタイプの層構成断面図である。

第2図は、本発明の偏光光源装置の一例の層構成断面図である。

第3図は、本発明の液晶表示装置の一例の層構成断面図である。

第4図は、コレステリック液晶層と1/4波長板との積層体を反射偏光板として用いる従来の偏光光源装置の層構成の断面、および入射した光の反射および透過の様子を説明する図である。

### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の光学積層体、偏光光源装置および液晶表示装置を詳細に説明する。

#### 1) 光学積層体

本発明の光学積層体は、コレステリック液晶層と1/4波長板とが積層されてなる。

##### (1) 1/4波長板

本発明に用いる1/4波長板は、固有複屈折値が正の材料からなる層(A層)の少なくとも1層と、固有複屈折値が負の材料からなる層(B層)の少なくとも1層とを有し、A層とB層における分子鎖の配向方向が等しいものである。

前記A層を構成する固有複屈折値が正の材料は、分子が一軸性の秩序をもって

配向したときに、光学的に正の一軸性を示す特性を有するものをいう。固有複屈折値が正の材料としては、例えば、棒状液晶、棒状液晶ポリマー、脂環式構造含有重合体樹脂、オレフィン系重合体、ポリエステル系重合体、ポリアリレンサルファイド系重合体、ポリビニルアルコール系重合体、ポリカーボネート系重合体、ポリアリレート系重合体、セルロースエステル系重合体、ポリエーテルスルホン系重合体、ポリスルホン系重合体、ポリアリルスルホン系重合体、ポリ塩化ビニル系重合体、あるいはこれらの多元（二元、三元など）共重合体などが挙げられる。これらは1種単独で、あるいは2種以上を組み合わせ用いることができる。

本発明においては、これらの中でも、脂環式構造含有重合体樹脂またはオレフィン系重合体が好ましく、光透過率特性、耐熱性、寸度安定性、光弾性特性などの観点から、脂環式構造含有重合体樹脂がより好ましい。

脂環式構造含有重合体樹脂は、重合体樹脂の繰り返し単位中に脂環式構造を有するものであり、主鎖中に脂環式構造を有する重合体樹脂および側鎖に脂環式構造を有する重合体樹脂のいずれも用いることができる。脂環式構造としては、例えば、シクロアルカン構造、シクロアルケン構造などが挙げられるが、熱安定性などの観点からシクロアルカン構造が好ましい。脂環式構造を構成する炭素数に特に制限はないが、通常4～30個、好ましくは5～20個、より好ましくは6～15個である。

脂環式構造を有する重合体樹脂中の脂環式構造を有する繰り返し単位の割合は、使用目的に応じて適宜選択されればよいが、通常50重量%以上、好ましくは70重量%以上、より好ましくは90重量%以上である。脂環式構造を有する繰り返し単位が過度に少ないと、光学積層体の耐熱性が低下するおそれがある。

脂環式構造含有重合体樹脂に特に制限はなく、例えば、ノルボルネン系重合体、単環の環状オレフィン重合体、環状共役ジエン系重合体、ビニル脂環式炭化水素重合体、およびこれら重合体の水素化物などが挙げられる。これらの中でも、耐熱性及び機械的強度に優れることなどから、ノルボルネン系重合体水素化物、ビニル脂環式炭化水素重合体およびその水素化物が好ましい。

ノルボルネン系重合体としては、ノルボルネン系単量体の開環重合体、ノルボ

ルネン系単量体と共重合可能な単量体との開環重合体、ノルボルネン系単量体付加重合体、ノルボルネン系単量体と共重合可能な単量体との付加重合体、これらの重合体の水素化物などを挙げることができる。これらの中で、ノルボルネン系単量体の開環重合体の水素化物は、耐熱性及び機械的強度が良好であり、特に好適に用いることができる。

ノルボルネン系単量体としては、例えば、ビシクロ[2. 2. 1]ヘプト-2-エン（慣用名：ノルボルネン）、トリシクロ[4. 3. 0. 1<sup>2</sup> · 5]デカー-3, 8-ジエン（慣用名：ジシクロペンタジエン）、7, 8-ベンゾトリシクロ[4. 3. 0. 1<sup>2</sup> · 5]デカー-3-エン（慣用名：メタノテトラヒドロフルオレン）、テトラシクロ[4. 4. 0. 1<sup>2</sup> · 5. 1<sup>7</sup> · 1<sup>0</sup>]ドデカー-3-エン（慣用名：テトラシクロドデセン）、およびこれらの化合物の誘導体（環に置換基を有するもの）などを挙げることができる。ここで、置換基としては、例えばアルキル基、アルキレン基、アルコキシカルボニル基、カルボキシル基などが挙げられる。また、これらの置換基は、同一または相異なって複数個が環に結合していてもよい。ノルボルネン系単量体は1種単独で、あるいは2種以上を組み合わせ用いることができる。

ノルボルネン系単量体と共重合可能な他の単量体としては、シクロヘキセン、シクロヘプテン、シクロオクテンなどのモノ環状オレフィン類およびその誘導体；シクロヘキサジエン、シクロヘプタジエンなどの環状共役ジエンおよびその誘導体；などが挙げられる。

ノルボルネン系単量体の開環重合体およびノルボルネン系単量体と開環共重合可能な他の単量体との開環共重合体は、単量体を開環重合触媒の存在下に（共）重合することにより得ることができる。

用いる開環重合触媒としては、ルテニウム、オスミウムなどの金属のハロゲン化物と、硫酸塩またはアセチルアセトン化合物、および還元剤とからなる触媒；あるいは、チタン、ジルコニウム、タングステン、モリブデンなどの金属のハロゲン化物またはアセチルアセトン化合物と、有機アルミニウム化合物とからなる触媒；などが挙げられる。

ノルボルネン系単量体の付加重合体およびノルボルネン系単量体と付加共重合



可能な他の単量体との付加重合体は、単量体を付加重合触媒の存在下に重合することにより得ることができる。

付加重合触媒としては、チタン、ジルコニウム、バナジウムなどの金属の化合物と有機アルミニウム化合物からなる触媒などを用いることができる。

ノルボルネン系単量体と付加重合可能な他の単量体としては、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-オクテン、1-デセン、1-ドデセン、1-テトラデセン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセン、1-エイコセンなどの炭素数2～20の $\alpha$ -オレフィンおよびこれらの誘導体；シクロブテン、シクロペンテン、シクロヘキセン、シクロオクテン、3a, 5, 6, 7a-テトラヒドロ-4, 7-メタノー1H-インデンなどのシクロオレフィンおよびこれらの誘導体；1, 4-ヘキサジエン、4-メチル-1, 4-ヘキサジエン、5-メチル-1, 4-ヘキサジエン、1, 7-オクタジエンなどの非共役ジエンなどが挙げられる。これらの単量体は1種単独で、あるいは2種以上を組み合わせる用いることができる。これらの中でも、 $\alpha$ -オレフィンが好ましく、エチレンがより好ましい。

本発明に用いる単環の環状オレフィン系重合体としては、シクロヘキセン、シクロヘプテン、シクロオクテンなどの付加重合体などが挙げられる。

本発明に用いる環状共役ジエン系重合体としては、シクロペンタジエン、シクロヘキサジエンなどの環状共役ジエン系単量体を1, 2-付加重合または1, 4-付加重合した重合体などが挙げられる。

ノルボルネン系重合体、単環の環状オレフィンの重合体および環状共役ジエンの重合体の分子量は使用目的に応じて適宜選定されるが、溶媒としてシクロヘキサン（重合体樹脂が溶解しない場合はトルエン）を用いたゲルパーミエーションクロマトグラフィー（以下、「GPC」と略記する。）で測定したポリイソブレンまたはポリスチレン換算の重量平均分子量（Mw）で、通常5,000～50,000、好ましくは8,000～200,000、より好ましくは10,000～100,000である。

本発明に用いるビニル脂環式炭化水素重合体は、ビニルシクロアルケンまたはビニルシクロアルカン由来の繰返し単位を有する重合体である。ビニル脂環式

炭化水素重合体としては、ビニルシクロヘキサンなどのビニル基を有するビニルシクロアルカン、ビニルシクロヘキセンなどのビニル基を有するビニルシクロアルケンなどのビニル脂環式炭化水素化合物の重合体およびその水素化物；スチレン、 $\alpha$ -メチルスチレンなどのビニル芳香族炭化水素化合物の重合体の芳香族部分水素化物などが挙げられる。

また、ビニル脂環式炭化水素重合体は、ビニル脂環式炭化水素化合物やビニル芳香族炭化水素化合物と、これらの単量体と共重合可能な他の単量体とのランダム共重合体の芳香族部分の水素添加物、ブロック共重合体の芳香族部分の水素添加物であってもよい。ブロック共重合としては特に制限されない。ブロック共重合としては、ジブロック、トリブロック、またはそれ以上のマルチブロックや傾斜ブロック共重合などが挙げられる。

ビニル脂環式炭化水素重合体の分子量は使用目的に応じて適宜選択されるが、溶媒としてシクロヘキサン（重合体樹脂が溶解しない場合はトルエン）を用いたGPCにより測定したポリイソプレンまたはポリスチレン換算の重量平均分子量が、通常10,000～300,000、好ましくは15,000～250,000、より好ましくは20,000～200,000の範囲であるときに、成形体の機械的強度および成形加工性とが高度にバランスされ好適である。

ノルボルネン系単量体の開環重合体の水素化物、ノルボルネン系単量体とこれと開環共重合可能なその他の単量体との開環共重合体の水素化物、ノルボルネン系単量体の付加重合体の水素化物、ノルボルネン系単量体とこれと共重合可能なその他の単量体との付加重合体の水素化物、ビニル脂環式炭化水素化合物の重合体の水素化物、ビニル芳香族炭化水素化合物の重合体の芳香族部分の水素化物、ビニル脂環式化合物やビニル芳香族化合物と、これらの単量体と共重合可能な他の単量体との共重合体の水素化物は、これらの重合体の溶液に、ニッケル、パラジウムなどの遷移金属を含む公知の水素化触媒を添加し、炭素-炭素不飽和結合を好ましくは90%以上水素化することによって得ることができる。

本発明に好適な脂環式構造含有重合体樹脂のガラス転移温度は、使用目的に応じて適宜選択されればよいが、優れた光学特性が得られる観点から、好ましくは80℃以上、より好ましくは100～250℃、さらに好ましくは120～200

0℃の範囲である。

本発明に好適な脂環式構造含有重合体樹脂は、分子量2,000以下の樹脂成分（すなわち、オリゴマー成分）の含有量が5重量%以下、好ましくは3重量%以下、より好ましくは2重量%以下である。オリゴマー成分の量が多いと樹脂積層体を延伸する際に、表面に微細な凹凸が発生したり、厚さムラを生じたりして面精度が悪くなる。

オリゴマー成分の量を低減するためには、重合触媒や水素化触媒の選択、重合、水素化などの反応条件、樹脂を成形用材料としてペレット化する工程における温度条件、などを最適化すればよい。オリゴマー成分の含有量は、例えば、シクロヘキサン（重合体樹脂が溶解しない場合はトルエン）を用いたGPCによって測定することができる。

前記B層を構成する固有複屈折値が負の材料は、分子が一軸性の秩序をもって配向したときに、光学的に負の一軸性を示す特性を有するものである。

前記固有複屈折値が負の材料としては、ディスコティック液晶、ディスコティック液晶ポリマー、ビニル芳香族系重合体、ポリアクリロニトリル系重合体、ポリメチルメタクリレート系重合体、セルロースエステル系重合体、これらの多元（二元、三元など）共重合体などが挙げられる。これらは1種単独で、あるいは2種以上を組み合わせ用いることができる。

これらの中でも、ビニル芳香族系重合体、ポリアクリロニトリル系重合体およびポリメチルメタクリレート系重合体の中から選択される少なくとも1種が好ましく、複屈折発現性が高いという観点から、ビニル芳香族系重合体がより好ましく、耐熱性が高い観点から、スチレンおよび／またはスチレン誘導体と無水マレイン酸との共重合体が特に好ましい。

ビニル芳香族系重合体としては、ポリスチレン、スチレンおよび／またはスチレン誘導体と、アクリロニトリル、無水マレイン酸、メチルメタクリレートおよびブタジエンから選ばれる少なくとも1種との共重合体が挙げられる。ここで、スチレン誘導体としては、4-メチルスチレン、4-クロロスチレン、3-メチルスチレン、4-メトキシスチレン、4-tert-ブトキシスチレン、 $\alpha$ -メチルスチレンなどが挙げられる。

本発明に用いるビニル芳香族系重合体のガラス転移温度は、優れた光学特性が得られる観点から、好ましくは110℃以上、より好ましくは120℃以上である。

本発明に用いる積層体は、前記A層とB層との層間にC層をさらに有するのが好ましく、A層-C層-B層の3層構造、またはA層-C層-B層-C層-A層若しくはB層-C層-A層-C層-B層の5層構造を有するのがより好ましく、A層-C層-B層-C層-A層の5層構造を有するのが特に好ましい。

前記C層は、固有複屈折値が正の樹脂および負の樹脂の双方と親和性がある材質のものから形成することができる。なかでも、温度190℃、荷重21.18Nで測定したメルトフローレート（MFR）が1g/10分以下であるエチレン-（メタ）アクリル酸エステル共重合体が好ましい。ここで、「（メタ）アクリル酸エステル」とは、アクリル酸エステルまたはメタクリル酸エステルを表す。

温度190℃、荷重21.18Nで測定したメルトフローレート（MFR）が1g/10分以下であるエチレン-（メタ）アクリル酸エステル共重合体としては、例えば、エチレン-アクリル酸メチル共重合体、エチレン-アクリル酸エチル共重合体、エチレン-アクリル酸プロピル共重合体、エチレン-アクリル酸ブチル共重合体、エチレン-メタクリル酸メチル共重合体、エチレン-メタクリル酸エチル共重合体、エチレン-メタクリル酸プロピル共重合体、エチレン-メタクリル酸ブチル共重合体などが挙げられる。

また、エチレン-（メタ）アクリル酸エステル共重合体として、エチレンと（メタ）アクリル酸エステルに、さらに他の共重合可能な単量体を共重合した三元以上の共重合体を用いることもできる。

他の共重合可能な単量体としては、プロピレン、1-ブテンなどの $\alpha$ -オレフィン；マレイン酸、フマル酸、イタコン酸などのカルボキシル基を有する単量体；無水マレイン酸、イタコン酸無水物などのカルボン酸無水物；酢酸ビニルなどのビニル単量体；などが挙げられる。

前記エチレン-（メタ）アクリル酸エステル共重合体の温度190℃、荷重21.18Nで測定したメルトフローレートが1g/10分を超えると、光学積層体の表面に皺が発生して表面平滑性が不良となり、コレステリック液晶層と積層

した場合に、所望の輝度向上効果を得ることができなくなるおそれがある。温度 190℃、荷重 21.18 Nでのメルトフローレートは、JIS K7210に従って測定することができる。

また、前記エチレンー（メタ）アクリル酸エステル共重合体は、該共重合体中の（メタ）アクリル酸エステルの構造単位の割合が5～50重量%であることが好ましく、10～30重量%であることがより好ましい。（メタ）アクリル酸エステル構造単位の割合が5重量%未満であると、各層間（A層とC層の間、あるいはB層とC層の間）の接着強度が低下するおそれがある。一方、（メタ）アクリル酸エステル構造単位の割合が50重量%を超えると、接着強度が低下して皺が発生するおそれがある。

本発明に用いる積層体においては、前記脂環式構造含有重合体樹脂の熔融粘度は、温度 250℃、剪断速度  $180 \text{ s e c}^{-1}$  で測定した値で 500～4,000 Pa・sであるのが好ましく、1,000～3,000 Pa・sであるのがより好ましい。また、前記ビニル芳香族系重合体の熔融粘度は、温度 250℃、剪断速度  $180 \text{ s e c}^{-1}$  で測定した値で、200～3,000 Pa・sであることが好ましく、300～2,000 Pa・sであるのがより好ましい。前記脂環式構造含有重合体樹脂の熔融粘度が 500 Pa・s 未満若しくは 4,000 Pa・s を超える場合、または前記ビニル芳香族系重合体の熔融粘度が 200 Pa・s 未満若しくは 3,000 Pa・s を超える場合には、共押出法により光学積層体を製造するときに成膜が不安定になるおそれがある。

前記積層体を製造する方法は特に制限はなく、例えば、（a）A層とB層とを別々に成膜し、接着層（C層）を介してドライラミネーションにより積層して積層体とする方法、（b）共押出法により成膜して積層体を得る方法などが挙げられる。これらの中でも、層間剥離強度が大きい積層体を得ることができ、かつ、生産効率に優れることから、（b）の共押出法による成膜法が好ましい。共押出法により積層体を得る方法は、具体的には、複数基の押出機を用い、固有複屈折値が正の材料と固有複屈折値が負の材料とを多層ダイから押出すことにより成膜するものである。

またこの場合には、本発明の目的を阻害しない範囲内で、他の添加剤を添加す

ることができる。他の添加剤としては、可塑剤や劣化防止剤などが挙げられる。可塑剤は、フィルムの機械的物性を改良するため、または乾燥速度を向上させるために添加する。

用いる可塑剤としては、リン酸エステルまたはカルボン酸エステルが挙げられる。リン酸エステルとしては、トリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェートなどが挙げられる。カルボン酸エステルとしては、ジメチルフタレート、ジエチルフタレート、ジブチルフタレート、ジオクチルフタレート、ジフェニルフタレートなどのフタル酸エステル；*O*-アセチルクエン酸トリエチル、*O*-アセチルクエン酸トリブチルなどのクエン酸エステル；オレイン酸ブチル；リシノール酸メチルアセチル、セバシン酸ジブチルなどの高級脂肪酸エステル；トリメット酸エステル；などが挙げられる。

劣化防止剤としては、酸化防止剤、過酸化分解剤、ラジカル禁止剤、金属不活性化剤、酸捕獲剤、アミン類などが挙げられる。劣化防止剤については、特開平3-199201号公報、特開平5-1907073号公報、特開平5-194789号公報、特開平5-271471号公報、特開平6-107854号公報などに記載がある。

これらの他の添加剤の添加量は、脂環式構造含有重合体樹脂に対して、通常0～20重量%、好ましくは0～10重量%、より好ましくは0～5重量%である。

このようにして得られる積層体の厚みは、得られる積層体の使用目的などに応じて適宜決定することができる。フィルムの厚みは、安定した延伸処理による均質な延伸フィルムが得られる観点から、好ましくは10～300 $\mu$ m、より好ましくは30～200 $\mu$ mである。

本発明の1/4波長板は、固有複屈折値が正の材料からなる層（A層）と固有複屈折値が負の材料からなる層（B層）を、遅相軸を直交させて積層することにより、各層が単独で示すレターデーションの波長分散を互いに軽減し、可視光全域の入射光に対してほぼ均一な1/4波長の位相差特性を与えるものである。

固有複屈折値が正の材料からなる層（A層）と固有複屈折値が負の材料からなる層（B層）を遅相軸を直交させて積層するには、各層の分子鎖の配向方向を等

しくさせればよい。本発明の1/4波長板は、固有複屈折値が異符号の材料からなる層（A層とB層）の積層体であるため、A層とB層との延伸方向を一致させれば、2相の遅相軸を必然的に直交させることができる。

このような1/4波長板は、前記積層体を延伸処理することにより製造することができる。積層体を延伸する方法は特に制限はなく、従来公知の方法を採用できる。延伸する方法としては、例えば、ロール側の周速の差を利用して縦方向に一軸延伸する方法、テンターを用いて横方向に一軸延伸する方法などが挙げられる。これらの中で、縦方向の一軸延伸が好適である。一軸延伸の延伸倍率に特に制限はないが、1. 1～3倍であることが好ましく、1. 2～2. 2倍であることがより好ましい。

前記積層体を延伸するときの温度は、前記A層およびB層を構成する樹脂のガラス転移温度を $T_g$ とすると、好ましくは $(T_g - 30)^\circ\text{C}$ から $(T_g + 60)^\circ\text{C}$ の間、より好ましくは $(T_g - 10)^\circ\text{C}$ から $(T_g + 50)^\circ\text{C}$ の温度範囲である。また、延伸倍率は、通常、1. 01～30倍、好ましくは1. 01～10倍、より好ましくは1. 01～5倍である。

また、前記積層体を前述した共押出法により製造した場合には、従来の1/4波長板の製造時に必要であった、延伸フィルムのチップの切り出しや、切り出したチップの貼り合わせなどの作業が不要となり、いわゆるロールトゥロール（Roll to Roll）方式により、連続的に長尺の1/4波長板を生産することができる。

本発明に用いる1/4波長板は、A層を少なくとも1層と、B層を少なくとも1層有し、前記A層とB層における分子鎖の配向が等しい積層体であれば、その層構成に特に制限されないが、A層/B層/A層、またはB層/A層/B層の層構成を有するのが好ましい。また、前記A層とB層との層間にC層をさらに有し、A層-C層-B層の3層構造、またはA層-C層-B層-C層-A層若しくはB層-C層-A層-C層-B層の5層構造を有するのがより好ましく、A層-C層-B層-C層-A層の5層構造を有するのが特に好ましい。

本発明に用いる1/4波長板は、厚さムラが5%以下、好ましくは4%以下、より好ましくは3%以下である。厚さムラが5%を超えると位相差の均一性が損

なわれ、面内での透過光強度や色調のムラが生じるおそれがある。厚さおよび厚さムラは、例えば、触針式膜厚計を用いて測定することができる。

厚さムラが5%以下の1/4波長板を得るためには、前記A層、B層およびC層を共押出しして積層体を得る際の樹脂温度、ダイ温度、引き取り速度や、延伸時の温度、延伸速度などを最適化して行なえばよい。また、A層の材料として、分子量2,000以下の樹脂成分の含有量が5重量%以下の脂環式構造含有重合体樹脂を用いるのが好ましい。

本発明に用いる1/4波長板のA層を構成する樹脂に含まれる揮発性成分の含有量は特に制限されないが、1000ppm以下が好ましく、500ppm以下であるのがより好ましい。揮発性成分の含有量が1000ppmを超えると、使用時に該揮発性成分が外部に放出されて、1/4波長板に寸法変化が生じて内部応力が発生し、位相差の均一性が損なわれるおそれがある。

揮発性成分は、1/4波長板のA層を構成する樹脂に微量含まれる分子量200以下の比較的低沸点の物質であり、例えば、残留単量体や溶媒などが挙げられる。揮発性成分の含有量は、A層を構成する樹脂に微量含まれる分子量200以下の物質の合計であり、A層を構成する樹脂をガスクロマトグラフィーにより分析することにより定量することができる。

揮発性成分含有量が1000ppm以下の樹脂を得る方法としては、例えば、(i) A層が揮発性成分含有量が1000ppm以下の樹脂からなる積層体を延伸する方法、(ii) A層が揮発性成分含有量が1000ppmを超える樹脂からなる積層体を用いて、延伸の工程中、または延伸後に乾燥して揮発性成分含有量を低減する方法などが挙げられる。これらの中でも、揮発性成分含有量がより低減された1/4波長を得るには、(i)の方法が好ましい。

また、本発明の1/4波長板の飽和吸水率は特に制限されないが、1/4波長板を構成するA層またはB層の少なくとも一方の飽和吸水率が、好ましくは0.01%以下、より好ましくは0.007%以下である。飽和吸水率が0.01%を越えると、使用する環境の変化により、材質の異なる積層体(1/4波長板)の内部で歪応力が発生し、フィルム面内でレターデーシンのムラができ、透過光の輝度にもムラができるおそれがある。飽和吸水率が上記範囲にある1/4波



長板は、長期間使用しても透過光の輝度にムラが発生せず、光学特性の安定性に優れる。

## (2) コレステリック液晶層

コレステリック液晶層は、一般に、厚み方向に螺旋を描くような規則的なねじれを有する液晶分子からなる。このような光学媒体では、ピッチ（液晶分子が $360^\circ$ 回転するのに必要な厚み）と入射光の波長がほぼ等しい場合、旋光性と選択反射性という光学的特質を示すことが知られている（例えば、液晶とディスプレイ応用の基礎、コロナ社、ISBN 4-339-00620-3）。また、コレステリック液晶層は、入射光のうち、ねじれ方向と同方向に回転する円偏光成分を反射し、その反射光の回転方向も同一方向となるのに対し、逆方向に回転する円偏光成分は透過させる性質を有する。

本発明に用いるコレステリック液晶層は、可視光の全波長領域にわたって円偏光分離機能を有したものでなければならない。このようなコレステリック液晶層としては、 $(\alpha)$  選択的に反射する光の中心波長が異なるコレステリック液晶層を組み合わせたもの、 $(\beta)$  一つのコレステリック液晶層からなり、厚み方向に対して螺旋のピッチが連続的に変化するものなどが挙げられる。

上記  $(\alpha)$  のコレステリック液晶層の場合には、各層で反射される円偏光の位相状態をそろえて各波長領域で異なる偏光状態となることを防止し、利用できる状態の偏光を増量する観点より、同じ方向の円偏光を反射するもの同士を組み合わせるのが好ましい。またこの場合には、反射光の中心波長に基づき波長順序で各コレステリック液晶層が積層されていることが、大視野角時の波長シフトを抑制する観点からより好ましい。

反射光の中心波長に基づき波長順序でコレステリック液晶層を積層する方法としては、例えば、選択反射光の中心反射が  $470\text{ nm}$ 、 $550\text{ nm}$ 、 $640\text{ nm}$ 、 $770\text{ nm}$  であるコレステリック液晶層をそれぞれ作製し、これらのコレステリック液晶層を任意に選択して、選択反射光の中心波長の順序で 3～7 層積層する方法が挙げられる。

選択反射光の中心波長が異なる複数のコレステリック液晶層を積層する方法としては、例えば、単なる重ね置き、粘着剤などの接着剤を介した接着などの方法

が挙げられる。

上記(β)のコレステリック液晶層は、次のようにして形成することができる。まず、特定波長の紫外線照射により異性化してキラル化剤となる化合物、液晶および紫外線吸収剤とを含有してなる液晶層に、表面（紫外線照射面）側から深さ方向に連続的に照射光強度が減衰するように、前記特定波長の紫外線を照射する。これにより、キラル化剤の存在量が表面側から深さ方向に連続的に減少した状態、すなわち、液晶の螺旋ピッチが液晶層の厚み方向に連続的に変化した状態の液晶層が得られる。次いで、前記特定波長の紫外線とは異なる波長の紫外線を液晶層に照射して、液晶層全体を硬化させることにより、この螺旋ピッチの傾斜的変化した状態を固定化させる。このようにして得られるコレステリック液晶層は、深さ方向に対して連続的に螺旋構造のピッチが変化しているものであり、可視光域すべての波長帯域で円偏光分離機能を有する。

このようなタイプのコレステリック液晶層としては、例えば、SID' 95, Asia Display., p 735 (1995年)、液晶., 第2巻、第2号、32-39頁 (1998年) などに記載されたものがある。

本発明に用いるコレステリック液晶の材料（液晶ポリマー）には特に制限はなく、液晶配向性を付与する共役性の直線状原子団（メソゲン）がポリマーの主鎖に導入された液晶ポリマー、該メソゲンがポリマーの側鎖に導入されたタイプの液晶ポリマーなど、種々のものを使用することができる。

メソゲンがポリマーの主鎖に導入された液晶ポリマーは、屈曲性を付与するスペーサ部を必要に応じて介してパラ置換環状化合物などからなるメソゲン基を結合した構造を有する。例えば、ポリエステル系やポリアミド系、ポリカーボネート系やポリエステルイミド系などのポリマーが挙げられる。

また、メソゲンがポリマーの側鎖に導入された液晶ポリマーとしては、ポリアクリレートやポリメタクリレート、ポリシロキサンやポリマロネートなどを主鎖骨格とし、側鎖として共役性の原子団からなるスペーサ部を必要に応じて介してパラ置換環状化合物などからなる低分子液晶化合物（メソゲン部）を有するものや、低分子カイラル剤含有のネマチック系液晶ポリマー、キラル成分導入の液晶ポリマー、ネマチック系とコレステリック系の混合液晶ポリマーなどが挙げられる。

また、アゾメチン形、アゾ形、アゾキシ形、エステル形、ビフェニル形、フェニルシクロヘキサン形、ピシクロヘキサン形の如きパラ置換芳香族単位やパラ置換シクロヘキシル環単位などからなるネマチック配向性を付与するパラ置換環状化合物を有するものに、不斉炭素を有する化合物などからなる適宜なキラル成分や低分子カイラル剤などを導入する方法などにより、コレステリック配向性のものとすることもできる（特開昭55-21479号公報、米国特許第5332522号公報など）。ここで、パラ置換環状化合物におけるパラ位における末端置換基としては、例えば、シアノ基やアルキル基、アルコキシ基などが挙げられる。

また、前記スペーサ部としては、ポリメチレン鎖やポリオキシメチレン鎖などが挙げられる。スペーサ部を形成する構造単位に含まれる炭素数は、メソゲン部の化学構造などにより適宜に決定される。一般的に、ポリメチレン鎖の場合には、0～20、好ましくは2～12であり、ポリオキシメチレン鎖の場合には、炭素数が0～10、好ましくは1～3である。

メソゲンがポリマーの主鎖に導入されたタイプのポリマーを製造する方法としては、成分モノマーをラジカル重合、カチオン重合またはアニオン重合などにより重合する方法などが挙げられる。また、メソゲンがポリマーの側鎖に導入されたタイプのポリマーを製造する方法としては、アクリル酸やメタクリル酸のエステルの如きビニル系モノマーに、所望によりスペーサ部を介してメソゲン基を導入したモノマーをラジカル重合法などにより重合する方法、ポリオキシメチルシリレンのSi-H結合を介し、白金系触媒の存在下にビニル置換メソゲンモノマーを付加反応させる方法、主鎖ポリマーに付与した官能基を介して相関移動触媒を用いたエステル化反応によりメソゲン基を導入する方法、マロン酸の一部に必要な応じスペーサ基を介してメソゲン基を導入したモノマーとジオールとを重縮合反応させる方法などが挙げられる。

コレステリック液晶層の厚み（複数の層からなる場合には全体の厚み）は、配向の乱れや透過率低下の防止、選択反射の波長範囲（反射波長域）の広さなどの観点から、通常1～50  $\mu\text{m}$ 、好ましくは2～30  $\mu\text{m}$ 、より好ましくは2～1

0  $\mu\text{m}$ である。また、支持基材を有する場合には、その基材を含めた合計厚みが20～200  $\mu\text{m}$ 、好ましくは25～150  $\mu\text{m}$ 、より好ましくは30～100  $\mu\text{m}$ である。

### (3) コレステリック液晶層と1/4波長板の積層方法

コレステリック液晶層と1/4波長板とを積層する方法としては、(I) 1/4波長板上に配向膜を設け、その上に直接形成する方法、(II) 別のベースフィルム(剥離板)上に液晶層を形成し、1/4波長板に転写する方法、(III) 別のベースフィルム(剥離板)上に液晶層を形成し、得られた積層体を1/4波長板に貼り合わせる方法などが挙げられる。

上記(I)の方法では、配向膜は、ポリイミド、ポリビニルアルコール、ポリエステル、ポリアリレート、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミドなどの膜を成膜した後、レーヨン布などでラビング処理することにより形成することができる。また、配向膜はSiOの斜方蒸着層または延伸処理により形成することもできる。

上記(II)および(III)の方法で用いるベースフィルムとしては、トリアセチルセルロース、ポリビニルアルコール、ポリイミド、ポリアリレート、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、アモルファスポリオレフィン、変性アクリル系ポリマー、エポキシ系樹脂などの合成樹脂からなる単層または積層のフィルム、ガラス板などが挙げられる。薄膜化の観点からは、合成樹脂フィルムが好ましく、偏光状態の変化の防止により光の利用効率の向上の観点から、複屈折による位相差の小さいものが好ましい。

ベースフィルム上に液晶層を形成する方法としては、ベースフィルム上に、液晶ポリマーの溶媒溶液を、スピンコート法、ロールコート法、フローコート法、プリント法、ディップコート法、流延成膜法、バーコート法、グラビア印刷法などの公知の塗工方法で塗膜を形成し、乾燥処理する方法などが挙げられる。液晶ポリマーの溶媒としては、塩化メチレン、シクロヘキサノン、トリクロロエチレン、テトラクロロエタン、N-メチルピロリドン、テトラヒドロフランなどを使用できる。

また、液晶層を形成する方法として、液晶ポリマーの加熱溶融物、好ましくは

等方相を呈する状態の加熱溶融物を、ベースフィルム上に、上述した塗工方法に準じた方法により塗膜を形成し、必要に応じて溶融温度を維持しつつ、さらに薄層に展開して固化させる方法を採用することもできる。

液晶層を形成するために行なう加熱処理の温度は、液晶ポリマーのガラス転移温度から等方相転移温度までの温度範囲、すなわち液晶ポリマーが液晶を呈する温度範囲である。また、配向状態は、ガラス転移温度未満に冷却することで固定化することができる。

前記 (III) の方法において、ベースフィルム上に液晶層を形成し、得られた積層体を 1 / 4 波長板に貼り合わせる方法としては、両者を透明な接着剤などからなる接着層を介して重ね合わせる方法が挙げられる。

用いる接着剤としては、アクリル酸系ベースポリマー、メタクリル酸系ベースポリマー、ブチルゴム系ベースポリマー、シリコーン系ベースポリマーなどのベースポリマーを用いたものが挙げられる。これらの中でも、アクリル酸系ベースポリマー、メタクリル酸系ベースポリマーが好ましい。

アクリル酸系ベースポリマーとしては、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、アクリル酸 2-エチルヘキシル、アクリル酸イソオクチルなどのアクリル酸エステルを単量体として用いて得られるポリマーが挙げられる。メタクリル酸系ベースポリマーとしては、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸ブチル、メタクリル酸 2-エチルヘキシル、アクリル酸イソオクチルなどのメタクリル酸エステルを単量体として用いて得られるポリマーが挙げられる。また、前記アクリル酸系ベースポリマーまたはメタクリル酸系ベースポリマーとして、前記アクリル酸エステルまたはメタクリル酸エステルと他の極性モノマーとの共重合体を用いることもできる。用いる極性モノマーとしては、アクリル酸、アクリル酸 2-ヒドロキシエチル、アクリル酸 2-ヒドロキシプロピル、アクリルアミド、アクリル酸 N, N-ジメチルアミノエチル、アクリル酸グリシジル、メタクリル酸、メタクリル酸 2-ヒドロキシエチル、メタクリル酸 2-ヒドロキシプロピル、メタクリルアミド、メタクリル酸 N, N-ジメチルアミノエチル、メタクリル酸グリシジルなどが挙げられる。

コレステリック液晶層と 1 / 4 波長板とを積層するときの接着層の厚みは特に

制限されないが、通常  $1 \sim 50 \mu\text{m}$  程度である。

以上のようにして得られる本発明の光学積層体の層構成断面図を図 1 (a) ~ (c) に示す。図 1 (a) に示すものは、入射光に対する選択反射の中心波長が異なる 3 種類のコレステリック液晶層 (11a、11b、11c) を順次積層してなるコレステリック液晶層 11 と、前記 A 層 - C 層 - B 層の 3 種 3 層からなる積層体 61 とを、接着層 21 を介して積層した光学積層体である。

図 1 (b) に示すものは、入射光に対する選択反射の中心波長が異なる 3 種類のコレステリック液晶層 (12a、12b、12c) を順次積層してなるコレステリック液晶層 12 と、前記 A 層 - C 層 - B 層 - C 層 - A 層の 3 種 5 層からなる積層体 (1/4 波長板) 62 とを、接着層 22 を介して積層した光学積層体である。

また、図 1 (c) に示すものは、螺旋のピッチが厚さ方向に対して連続的に変化する構造をもつコレステリック液晶層 13 と、前記 A 層 - C 層 - B 層 - C 層 - A 層の 3 種 5 層からなる積層体 (1/4 波長板) 63 とを、接着層 23 を介して積層した光学積層体である。

前述したように、脂環式構造含有重合体樹脂からなる層 (A 層) と、特定の熱可塑性樹脂からなる層 (B 層) との間に、特定のメルトフローレートを有するエチレン - (メタ) アクリル酸エステル共重合体からなる層 (C 層) を積層すると、長期にわたって安定した輝度向上効果を発揮する光学積層体を得ることができる。

本発明の光学積層体を、例えば、サイドライト型導光板などの適宜な面光源と組み合わせて用いることにより、コレステリック液晶層による反射円偏光を偏光解消して出射光として再利用することで反射ロスをなくすることができる。また、その出射光をコレステリック液晶層に積層された光学積層体を介して位相制御して偏光板透過性の直線偏光成分を豊富に含む状態に変換することで、偏光板による吸収ロスを防止して輝度の向上を図ることができる。

## 2) 偏光光源装置

本発明の偏光光源装置は、本発明の光学積層体を備えることを特徴とする。本発明の偏光光源装置は、光反射層、光源および本発明の光学積層体を備え、光源

から発した光が光学積層体のコレステリック液晶層側から入射し、光学積層体で反射した反射円偏光を光反射層で反射し、光学積層体に再入射するように光反射層、光源および光学積層体を配置してなるのが好ましい。

本発明の偏光光源装置の層構成の例を図2に示す。図2中、7aは光源、8aは光源ホルダ、9aは導光板、10aは反射層、14はコレステリック液晶層、15aは拡散板、64は1/4波長板、16aは偏光板である。側面に配置された光源7aからの光は、導光板9aに入射し、上方（コレステリック液晶層14側）に出射する。コレステリック液晶層14に入射した光は、左右いずれか一方の円偏光が透過し、他方の円偏光は反射して導光板9aに再入射する。導光板に再入射した光は、下面の反射層10aで反射して再びコレステリック液晶層14に入射し、透過光と反射光に再度分離される。これにより、光源7aから出射した光の有効利用が図られ、優れた輝度向上効果を得ることができる。

光源7aとしては特に制限されず、従来公知のものを用いることができる。導光板9aとしては、その形状が入射面に対向する側端部の厚さが入射面のそれよりも薄い形状のもの（くさび型）が好ましい。また、出射面よりの出射効率に優れ、その出射面に対する垂直性に優れて出射光の有効利用を図ることなどの観点から、微細なプリズム状凹凸を有する構造のものが好ましい。導光板9aは、ノルボルネン系重合体、ポリメチルメタクリレート、ポリカーボネート、ポリスチレンなどの透明性を有する材料で形成することができる。また、反射層10aは、例えば、メッキ層、金属蒸着層、金属箔、金属蒸着シート、メッキシートなどにより適宜に形成することができる。反射層は、導光板の対向面に一体化されていても良いし、反射シートなどとして導光板と重ね合わせて形成することもできる。

本発明の偏光光源装置は、本発明の光学積層体を有しているので、優れた輝度向上効果を奏し、かつ、この輝度向上効果を長期にわたって安定して発揮することができる。

### 3) 液晶表示装置

本発明の液晶表示装置は、本発明の偏光光源装置を有し、さらにその上方に液晶セルを備えることを特徴とする。液晶表示装置は、一般に、液晶シャッターと

して機能する液晶セルとそれに付随する駆動装置、偏光板、バックライト、および必要に応じて補償用位相差板などの構成部品を組み合わせることにより製造することができる。本発明の液晶表示装置は、本発明の光学積層体を用いる点を除いて特に限定はなく、従来法に準じた方法により製造することができる。

本発明の液晶表示装置の層構成の例を図3に示す。図3に示す液晶表示装置は、本発明の偏光光源装置をバックライトシステムに用いている。図3中、17aは液晶セル、16aは下方の偏光板、18aは上方の偏光板、15a、19aは拡散板である。なお、下側の偏光板16aおよび拡散板(15a, 19a)は省略することもできる。

用いる液晶モードは特に限定されない。液晶モードとしては、例えば、TN (Twisted nematic) 型、STN (Super Twisted Nematic) 型、HAN (Hybrid Aligned Nematic) 型などが挙げられる。また、偏光板(16a, 18a)としては特に制限されず、従来公知のものを使用することができる。

本発明の液晶表示装置は、本発明の光学積層体を有しているので優れた輝度向上効果を得ることができ、また、この輝度向上効果を長期にわたって安定して発揮する。

#### (実施例)

以下、実施例および比較例により本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例により何ら限定されるものではない。

なお、実施例および比較例において、各層の材料として用いた重合体および樹脂のメルトフローレート(MFR)は、温度190℃、荷重21.18Nで測定した値であり、溶融粘度は、温度250℃、剪断速度180 sec<sup>-1</sup>で測定した値である。また、分子量2,000以下の樹脂成分(オリゴマー成分)の含有量は、GPC(シクロヘキサン溶媒)を用いて測定し、定量した。

実施例および比較例において、評価は下記の方法により行った。

#### (1) 1/4波長板の厚さおよびそのムラ(ばらつき)

接触式膜厚計を用い、1/4波長板の長さ方向20mmごとに10ヶ所について、シート中央部と両端部の厚みを測定し、合計30ヶ所の平均値を求めた。ま



た、前記30ヶ所の中の最大値、最小値および平均値について、 $[(\text{最大値}-\text{最小値})/2]/\text{平均値} \times 100$ を求め、これを厚さムラの値(%)とした。

#### 製造例1 ノルボルネン系ポリマー1の製造

脱水したシクロヘキサン500部に、窒素雰囲気下、1-ヘキセン0.82部、ジブチルエーテル0.15部、トリイソブチルアルミニウム0.30部を室温で反応器に入れ混合した後、45℃に保ちながら、トリシクロ[4.3.0.1<sup>2,5</sup>]デカー3,7-ジエン(ジシクロペンタジエン、以下「DCP」と略記する。)80部、7,8-ベンゾトリシクロ[4.4.0.1<sup>2,5</sup>.1<sup>7,10</sup>]デカー3-エン(メタノテトラヒドロフルオレン、以下、「MTF」と略記する。)70部、およびテトラシクロ[4.4.0.1<sup>2,5</sup>.1<sup>7,10</sup>]ドデカー3-エン(テトラシクロドデセン、以下、「TCD」と略記する。)からなるノルボルネン系単量体混合物と、六塩化タングステン(0.7%トルエン溶液)40部とを、2時間かけて連続的に添加して重合した。重合溶液にブチルグリシジルエーテル1.06部とイソプロピルアルコール0.52部を加えて重合触媒を不活性化し、重合反応を停止させた。

次に、得られた開環重合体を含有する反応溶液100部に対して、シクロヘキサン270部を加え、さらに水素化触媒としてニッケル-アルミナ触媒(日揮化学(株)製)5部を加え、水素により5MPaに加圧して攪拌しながら温度200℃まで加温した後、4時間反応させ、DCP/MTF/TCD開環共重合体水素化物ポリマー(ノルボルネン系ポリマー1)を20%含有する反応液を得た。

得られたノルボルネン系ポリマー1中の各ノルボルネン系単量体の共重合比率を、重合後の反応液中の残留ノルボルネン類の組成(ガスクロマトグラフィー法による)から計算したところ、DCP/MTF/TCD=40/25/35でほぼ仕込み組成に等しかった。このノルボルネン系ポリマー1の重量平均分子量(Mw)は35,000であり、分子量分布は2.1、分子量2,000以下の樹脂成分の含有量は0.9重量%であった。また、水素添加率は99.9%、Tgは134℃、溶融粘度は520Pa・sであった。

反応液をろ過することにより水素化触媒を除去した後、酸化防止剤(商品名:イルガノックス1010、チバスペシャリティ・ケミカルズ社製)を得られた溶

液に添加して、溶解させた（酸化防止剤の添加量は、重合体100部あたり0.1部）。次いで、円筒型濃縮乾燥器（日立製作所（株）製）を用いて、温度270℃、圧力1kPa以下で、溶液から、溶媒であるシクロヘキサンおよびその他の揮発性成分を除去することにより、ノルボルネン系ポリマー1を得た。

#### 製造例2 ノルボルネン系ポリマー2の製造

1-ヘキセンを0.80部、ジブチルエーテルを0.14部、重合反応温度を55℃とした以外は、製造例1と同様にしてノルボルネン系ポリマー2を得た。このノルボルネン系ポリマー2の重量平均分子量（Mw）は36,000、分子量分布は2.2、分子量2,000以下の樹脂成分の含有量は5.5重量%、水素添加率は99.9%、Tgは133℃、熔融粘度は510Pa・sであった。

#### 製造例3 ノルボルネン系ポリマー3の製造

製造例1と製造例2において、それぞれ中間で得られるDCP/MTF/TCDDの開環共重合体水素化物ポリマーを20%含有する反応溶液（ろ過により水素化触媒を除去したもの）の200部ずつを混合し、400部の混合反応液を得た。次いで、製造例1と同様にして、ノルボルネン系ポリマー3を得た。

ノルボルネン系ポリマー3の重量平均分子量（Mw）は35,000、分子量分布は2.2、分子量2,000以下の樹脂成分の含有量は3.2重量%、水素添加率は99.9%、Tgは133℃、熔融粘度は510Pa・sであった。

#### 製造例4 1/4波長板の製造

製造例1で得られたノルボルネン系ポリマー1からなるA層、ポリスチレン（ノヴァ・ケミカル社製、Daylark D332、熔融粘度440Pa・s、オリゴマー成分含有量3重量%）からなるB層、およびエチレン-アクリル酸エチル共重合体（三井・デュポン・ポリケミカル（株）製、EVA FLEX-EEA A-170、MFR 0.5g/10分、熔融粘度550Pa・s）からなるC層を有する、A層（50μm）-C層（10μm）-B層（50μm）-C層（10μm）-A層（50μm）の3種5層の積層体を押出成形にて製造した。

得られた積層体を120℃で65%の一軸延伸処理を行って、5層構成の延伸フィルム（1/4波長板）を得た。この延伸フィルムの表面には、肉眼で確認できるような皺、凹凸、白化などは見られなかった。この延伸フィルムの全体の厚

さと厚みムラを第1表に示す。また、得られた延伸フィルムについて、レターデーション (Re) の波長依存性を、王子計測 (株) 製の「KOBRA 21DH」で測定 (10点平均) した。測定結果を第1表に示す。

#### 製造例5 1/4波長板の製造

製造例4において、ノルボルネン系ポリマー1に代えて、ノルボルネン系ポリマー2を用いた以外は製造例4と同様にして、A層 (50  $\mu$ m) - C層 (10  $\mu$ m) - B層 (50  $\mu$ m) - C層 (10  $\mu$ m) - A層 (50  $\mu$ m) の3種5層の積層体を押出成形にて製造した。

得られた積層体を120℃で65%の一軸延伸処理を行って、5層構成の延伸フィルム (1/4波長板) を得た。この延伸フィルムの表面には、肉眼で確認できるような皺、凹凸、白化などは見られなかった。この延伸フィルムの全体の厚さと厚みムラを第1表に示す。また、得られた延伸フィルムについて、レターデーション (Re) の波長依存性を、王子計測 (株) 製の「KOBRA 21DH」で測定 (10点平均) した。測定結果を第1表に示す。

#### 製造例6 1/4波長板の製造

製造例4において、ノルボルネン系ポリマー1に代えて、ノルボルネン系ポリマー3を用いた以外は製造例4と同様にして、A層 (50  $\mu$ m) - C層 (10  $\mu$ m) - B層 (50  $\mu$ m) - C層 (10  $\mu$ m) - A層 (50  $\mu$ m) の3種5層の積層体を押出成形にて製造した。

得られた光学積層体を120℃で65%の一軸延伸処理を行って、5層構成の延伸フィルム (1/4波長板) を得た。この延伸フィルムの表面には、肉眼で確認できるような皺、凹凸、白化などは見られなかった。この延伸フィルムの全体の厚さと厚みムラを第1表に示す。また、得られた延伸フィルムについて、レターデーション (Re) の波長依存性を、王子計測 (株) 製の「KOBRA 21DH」で測定 (10点平均) した。測定結果を第1表に示す。

第 1 表

	A層	全体厚さ ( $\mu\text{m}$ )	厚さムラ (%)	$R_e/\lambda$		
				$\lambda = 450\text{nm}$	$\lambda = 550\text{nm}$	$\lambda = 650\text{nm}$
製造例4	ノルボルネン系ポリマー1	110	2.2	0.250	0.255	0.240
製造例5	ノルボルネン系ポリマー2	108	5.8	0.245	0.254	0.235
製造例6	ノルボルネン系ポリマー3	110	4.0	0.248	0.252	0.237

第1表より、製造例4～6で得られた1/4波長板は、波長( $\lambda$ )450nm、550nm、650nmにおいて、 $R_e/\lambda$ が0.235～0.255の範囲にあり、広帯域1/4波長板の特性を有していた。

#### 実施例1 光学積層体の製造

ガラス転移温度が異なる3種のアクリル系主鎖の側鎖型コレステリック液晶ポリマーを、厚さ30mmのアセチルセルロースフィルムのポリイミドラビング処理面に、スピンコート法により成膜(厚さ2 $\mu\text{m}$ )した。次いで、所定温度に加熱して急冷することにより、選択反射の中心波長が470nm、550nm、640nmの3層のコレステリック液晶層を当該順序で順次積層したコレステリック液晶層積層体を得た。

上記で得たコレステリック液晶層積層体の選択反射の中心波長が640nmのコレステリック液晶層の上面に、製造例4で得た1/4波長板をアクリル系粘着剤を使用して貼り合わせて、実施例1の光学積層体を得た。

#### 実施例2 光学積層体の製造

実施例1において、製造例4で得た1/4波長板に代えて、製造例6で得た1/4波長板を用いた以外は、実施例1と同様にして実施例2の光学積層体を得た。

#### 実施例3 液晶表示用バックライト装置の製造

微細プリズム構造を形成した導光板の側面に、直径3mmの冷陰極管を配置し、銀蒸着のポリエステルフィルムからなる光源ホルダにて陰極管を包囲し、導光板の下面に銀蒸着のポリエステルフィルムからなる反射シートを配置してなるサイドライト型面光源装置を用意した。

次いで、この面光源装置の導光板の上面に、シリカ粒子を含有し、表面が微細

凹凸構造の拡散シートを配置し、その上に実施例1で得られた光学積層体を配置したバックライト装置を用意した。このバックライト装置は、正面輝度にはムラがなく、面全体に均一な出光をしていた。また、出射光に色つきは見られず、均一な白色光であった。

また、このバックライト装置について、波長400～700nmで正面出射光に対する平均偏光度を測定したところ、94%であった。光源の利用率は、本発明の光学積層体の代わりに偏光板を単独で使用した場合の1.6倍であった。

#### 実施例4 液晶表示装置用バックライト装置の製造

実施例1で得た光学積層体に代えて、実施例2で得た光学積層体を使用した以外は、実施例3と同様にして液晶表示装置用バックライト装置を作製した。

このバックライト装置は、正面輝度にはムラがなく、面全体に均一な出光をしていた。また、出射光に色つきは見られず、均一な白色光であった。

また、このバックライト装置について、波長400～700nmで正面出射光に対する平均偏光度を測定したところ、91%であった。光源の利用率は、本発明の光学積層体の代わりに偏光板を単独で使用した場合の1.5倍であった。

#### 比較例1

1/4波長板として、製造例5で得た1/4波長板を用いた以外は、実施例1と同様にして光学積層体を製造し、さらに実施例3と同様にしてバックライト装置を作製した。

このバックライト装置は、正面輝度にはムラがあり、均一な出光は得られなかった。また、場所によって出射光に若干の色つきが見られた。

このバックライト装置について、波長400～700nmで正面出射光に対する平均偏光度を測定したところ、85%であった。光源の利用率は、比較例の光学積層体の代わりに偏光板を単独で使用した場合の1.4倍であった。

厚さムラが5%以下である1/4波長板を用いた実施例1および2の光学積層体を使用した偏光光源は、正面輝度や出射光の色調にムラがなく、光の利用効率も良好であった。これに対し、厚さムラが5%を超える1/4波長板を用いた比較例1の光学積層体を使用した偏光光源は、正面輝度や出射光の色調に部分的にムラが認められ、光の利用効率も実施例のものに比して低かった。

### 産業上の利用可能性

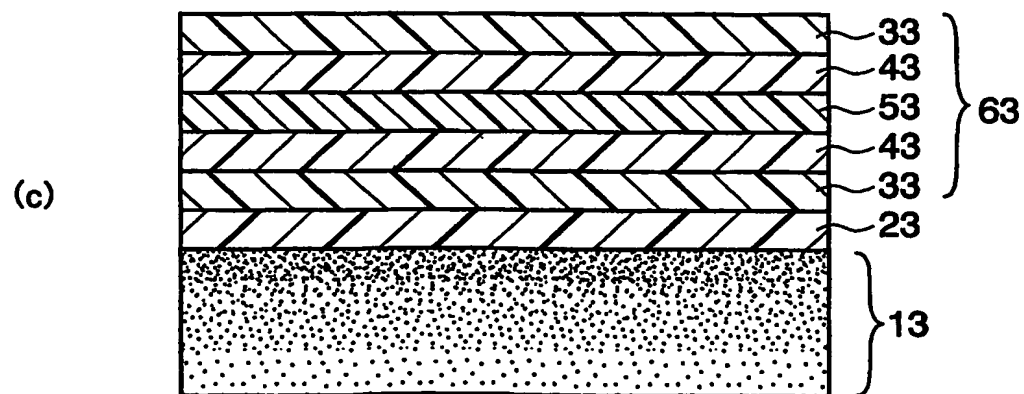
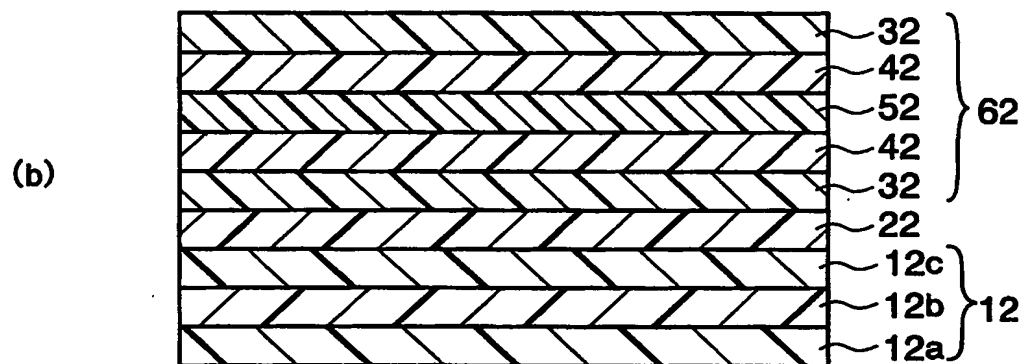
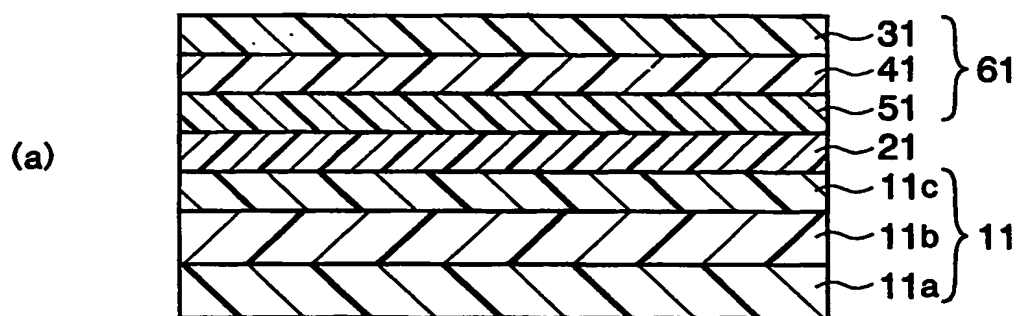
本発明によれば、コレステリック液晶層と特定の  $1/4$  波長板とを積層してなる光学積層体であって、優れた輝度向上効果を発揮し、かつ、長期にわたって安定した輝度向上効果を発揮する光学積層体、並びにこの光学積層体を備える偏光光源装置および液晶表示装置が提供される。

## 請 求 の 範 囲

1. コレステリック液晶層と1/4波長板とを積層してなる光学積層体であって、前記1/4波長板が、固有複屈折値が正の材料からなる層(A層)の少なくとも1層と、固有複屈折値が負の材料からなる層(B層)の少なくとも1層とを有し、前記A層とB層における分子鎖の配向方向とが等しく、かつ、前記1/4波長板の厚さムラが5%以下のものであることを特徴とする光学積層体。
2. 前記1/4波長板が、固有複屈折値が正の材料と固有複屈折値が負の材料とを共押出しして得た積層体を延伸して得られたものである請求項1に記載の光学積層体。
3. 前記固有複屈折値が正の材料が脂環式構造含有重合体樹脂であり、その分子量2,000以下の樹脂成分の含有量が5重量%以下のものである請求項1または2に記載の光学積層体。
4. 前記固有複屈折値が負の材料がビニル芳香族系重合体である請求項1～3のいずれかに記載の光学積層体。
5. 前記1/4波長板が、A層/B層/A層、またはB層/A層/B層の構成を有するものである請求項1～4のいずれかに記載の光学積層体。
6. 請求項1～5のいずれかに記載の光学積層体を備えることを特徴とする偏光光源装置。
7. 光反射層、光源および請求項1～5のいずれかに記載の光学積層体を備え、光源から発した光が、光学積層体のコレステリック液晶層側から入射し、光学積層体で反射した反射円偏光を光反射層で反射し、光学積層体に再入射するように光反射層、光源および光学積層体を配置してなる請求項6に記載の偏光光源装置。
8. 請求項6または7に記載の偏光光源装置を備える液晶表示装置。

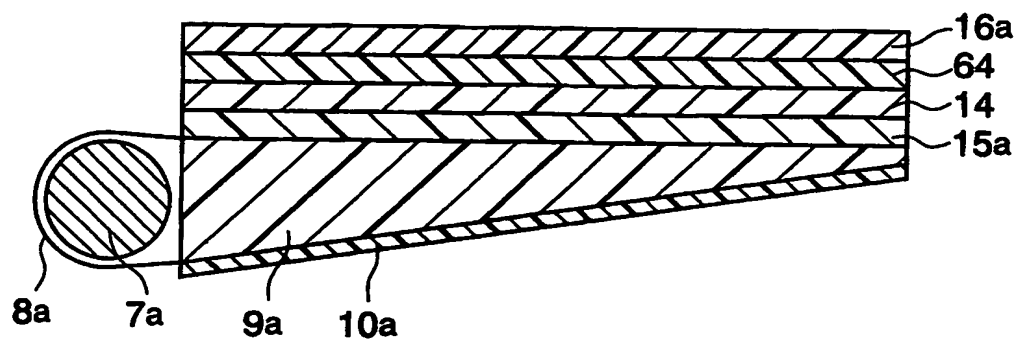
図 面

第1図

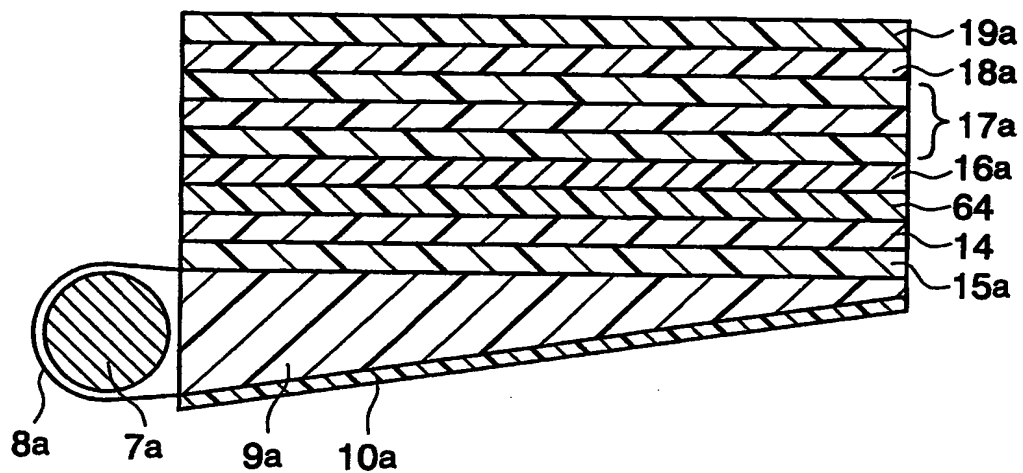




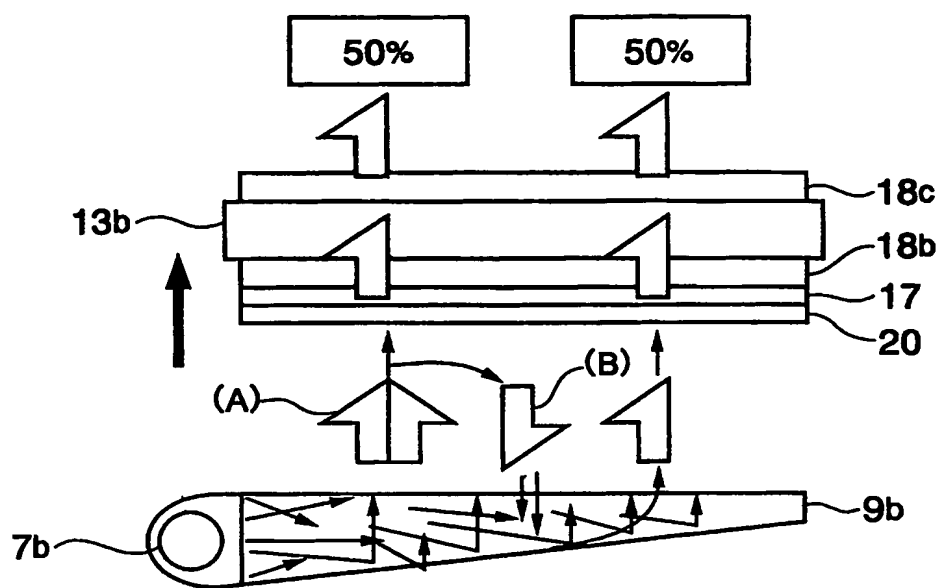
第2図



第3図



第4図



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.  
PCT/JP03/07618

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> G02B5/30

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> G02B5/30

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 2002/0005925 A1 (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 17 January, 2002 (17.01.02), Full text; all drawings & JP 2002-40258 A	1-8
Y	EP 1058148 A2 (Nitto Denko Corp.), 06 December, 2000 (06.12.00), Full text; all drawings & JP 2000-321431 A	1-8

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
 "E" earlier document but published on or after the international filing date  
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
18 August, 2003 (18.08.03)

Date of mailing of the international search report  
02 September, 2003 (02.09.03)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> G02B5/30

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> G02B5/30

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2003年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2003年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2003年

国際調査で使用了電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	US 2002/0005925 A1 (Fuji Photo Film Co., Ltd.) 2002. 01. 17, 全文, 全図 & JP 2002-40258 A	1-8
Y	EP 1058148 A2 (Nitto Denko Corporation) 2000. 12. 06, 全文, 全図 & JP 2000-321431 A	1-8

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

18. 08. 03

国際調査報告の発送日

02.09.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

山村 浩



2V

9219

電話番号 03-3581-1101 内線 3271